

10/529182

JCO6 Rec CT/PTO 24 MAR 2005

**THE FOLLOWING ARE THE ENGLISH TRANSLATION
OF ANNEXES TO THE INTERNATIONAL PRELIMINARY
EXAMINATION REPORT (ARTICLE 34):**

Amended Sheets (Pages 12-13)

Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Rec'd PCT/PTO 24 MAR 2005
PCT/EP2003/010381



Applicant's or agent's file reference 0000053959	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/EP2003/010381	International filing date (day/month/year) 18 September 2003 (18.09.2003)	Priority date (day/month/year) 27 September 2002 (27.09.2002)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C07C 263/20, 265/14, B01D 3/00		
Applicant BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 5 sheets, including this cover sheet.

☒ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of 1 sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

Date of submission of the demand 06 April 2004 (06.04.2004)	Date of completion of this report 28 January 2005 (28.01.2005)
Name and mailing address of the IPEA/EP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/EP2003/010381

I. Basis of the report

1. With regard to the elements of the international application:*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:
 pages _____ 1-12 _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☒ the claims:
 pages _____ 9, 10 _____, as originally filed
 pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
 pages _____, filed with the demand
 pages _____ 1-8 _____, filed with the letter of 25 November 2004 (25.11.2004)
- ☒ the drawings:
 pages _____ 1/2-2/2 _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item. These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

P/EP 03/10381

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-8, 10	YES
	Claims	9	NO
Inventive step (IS)	Claims	1-8, 10	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-10	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations**i) Reference has been made to the following documents:**

- D1: US-A-3 892 634 (HAJEK JAMES D ET AL)
1 July 1975 (1975-07-01)
- D2: DATABASE WPI Section Ch, Week 197708
Derwent Publications Ltd, London, GB;
Class E14, AN 1977-001516 XP00226957 &
RO 61 695 A (PETRU PONI INST CHI),
15 September 1976 (1976-09-15)
- D3: US-A-5 962 728 (KEYVANI MAJID ET AL)
5 October 1999 (1999-10-05)
- D4: US-A-4 118 286 (BURNS SIMON PIERCE ET AL)
3 October 1978 (1978-10-03)
- D5: FR-A-1 487 546 (UPJOHN CO)
7 July 1967 (1967-07-07)
- D6: GB-A-1 083 910 (ICI LTD)
20 September 1967 (1967-09-20)
- D7: US-A-3 471 543 (SAYIGH ADNAN A R)
7 October 1969 (1969-10-07).

ii) The reprocessing of reaction residue from phosgenation reactors in a film evaporator is described in D1 to D7.

/...

The reaction products of the prior art and that of the present application are produced by the same method, namely by reacting primary amines with phosgene.

The essential feature of the present invention is that, in producing isocyanates by reacting primary amines with phosgene, the reaction residue, in which undecomposed carbamoyl chloride remains as a solid in a suspension, is reprocessed in a film evaporator.

The subject matter of claims 1-8 and 10 of the present application satisfies the requirements of PCT Article 33(2).

Claim 9 relates to a production facility characterised only by a reactor and a film evaporator. In the light of D1 to D7, facilities of this type are not considered novel. It is further pointed out that the resulting products do not comprise any features that contribute to the novelty of said facility.

Thus, neither novelty nor an inventive step can be acknowledged in respect of the subject matter of claim 9 (PCT Article 33(2) and (3)).

The invention addresses the problem of devising a method for the production of isocyanates, which method can be implemented with the least possible loss of yield whilst, at the same time, phosgene hold-up is minimised.

/...

In order to solve the above problem, the reaction product that has not yet been reprocessed, in which undecomposed carbamoyl chloride remains as a solid in a suspension, is reprocessed in a film evaporator.

None of the cited documents renders this solution obvious. The subject matter of claims 1-8 and claim 10 of the present application therefore satisfies the requirements of PCT Article 33(3).

Rec'd PCT/PTO 24 MAR 2005
REC'D 31 JAN 2005
WIPO PCT

VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESEN

PCT



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT (Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000053959	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/PEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 03/10381	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 18.09.2003	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 27.09.2002
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C263/20		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT		

1. Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.
 - ☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

Diese Anlagen umfassen insgesamt 1 Blätter.

3. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:
 - I ☒ Grundlage des Bescheids
 - II ☐ Priorität
 - III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
 - IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
 - V ☒ Begründete Feststellung nach Regel 66.2 a)ii) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
 - VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
 - VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
 - VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 16.04.2004	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 28.01.2005
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Bueno Torres, M Tel. +49 89 2399-8290 

I. Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Bestandteile** der internationalen Anmeldung (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.17)*):

Beschreibung, Seiten

1-12 in der ursprünglich eingereichten Fassung

Ansprüche, Nr.

9, 10 in der ursprünglich eingereichten Fassung
1-8 eingegangen am 25.11.2004 mit Telefax

Zeichnungen, Blätter

1/2-2/2 in der ursprünglich eingereichten Fassung

2. Hinsichtlich der **Sprache**: Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

Die Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache eingereicht; dabei handelt es sich um:

- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)).
- ☐ die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)).
- ☐ die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3).

3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das:

- ☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.
- ☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.
- ☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.
- ☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.
- ☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER
PRÜFUNGSBERICHT**

Internationales Aktenzeichen **PCT/EP 03/10381**

5. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)).

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen; sie sind diesem Bericht beizufügen.)

6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:

V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

- | | |
|--------------------------------|--|
| 1. Feststellung | |
| Neuheit (N) | Ja: Ansprüche 1-8, 10
Nein: Ansprüche 9 |
| Erfinderische Tätigkeit (IS) | Ja: Ansprüche 1-8, 10
Nein: Ansprüche |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-10
Nein: Ansprüche: |

2. Unterlagen und Erklärungen:

siehe Beiblatt

V.i) Die folgenden Dokumente sind in Betracht gezogen worden:

- D1: US-A-3 892 634 (HAJEK JAMES D ET AL) 1. Juli 1975 (1975-07-01)
- D2: DATABASE WPI Section Ch, Week 197708 Derwent Publications Ltd., London, GB; Class E14, AN 1977-001516 XP002269597 & RO 61. 695 A (PETRU PONI INST CHI), 15. September 1976 (1976-09-15)
- D3: US-A-5 962 728 (KEYVANI MAJID ET AL) 5. Oktober 1999 (1999-10-05)
- D4: US-A-4 118 286 (BURNS SIMON PIERCE ET AL) 3. Oktober 1978 (1978-10-03)
- D5: FR-A-1 487 546 (UPJOHN CO) 7. Juli 1967 (1967-07-07)
- D6: GB-A-1 083 910 (ICI LTD) 20. September 1967 (1967-09-20)
- D7: US-A-3 471 543 (SAYIGH ADNAN A R) 7. Oktober 1969 (1969-10-07)

ii) Die Aufarbeitung von Reaktionsausträgen aus Phosgenierreaktoren in einem Schichtverdampfer ist in D1-D7 beschrieben.

Das Reaktionsprodukt vom Stand der Technik und von der vorliegenden Anmeldung kommen aus dem gleichen Herstellungsverfahren, nämlich durch Umsetzung von primären Aminen mit Phosgen.

Das wesentliche Merkmal der vorliegenden Erfindung liegt darin, daß bei der Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung von primären Aminen mit Phosgen der Reaktionsaustrag **welcher noch nicht zersetztes Carbamylchlorid als Feststoff in einer Suspension enthält**, in einem Schichtverdampfer aufgearbeitet wird.

Der vorliegende Anmeldungsgegenstand gemäss Ansprüche 1-8 und 10 erfüllt die Erfordernisse des Artikels 33(2) PCT.

Anspruch 9 bezieht sich auf eine Produktionsanlage lediglich gekennzeichnet durch ein Reaktor und ein Schichtverdampfer. Solche Anlage sind angesichts der Offenbarung von D1-D7 nicht als neu angesehen. Es wird auch darauf hingewiesen daß die Produkte die hergestellt werden keine zur Neuheit der Anlage beitragende Merkmale darstellen.

Demzufolge kann die Neuheit und erfinderische Tätigkeit für den Anmeldungsgegenstand von Anspruch 9 nicht anerkannt werden Art. 33(2) und

33(3)PCT.

Es lag der Erfindung die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten bereitzustellen, dass mit möglichst geringen Ausbeuteverlusten bei gleichzeitig möglichst niedrigem Phosgen-Hold-up durchgeführt werden kann.

Die Aufgabe könnte gelöst werden, dass noch nicht aufgearbeitete Reaktionsprodukt, welches noch nicht zersetztes Carbamoylchlorid als Feststoff in einer Suspension enthält, in einem Schichtverdampfer aufgearbeitet wird.

Keine der zitierten Entgegenhaltungen legt diese Lösung nahe. Der vorliegende Anmeldungsgegenstand gemäss Ansprüche 1-8 und 10 erfüllt daher die Erfordernisse des Artikels 33(3) PCT.

Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von Isocyanaten durch Umsetzung
5 von primären Aminen mit Phosgen in einem Reaktor, dadurch gekennzeichnet, dass der Reaktionsaustrag in Form einer Suspension vorliegt, die das herzustellende Isocyanat als Flüssigkeit und Carbamylchloride als Feststoff enthält, und die Suspension in einem Schichtverdampfer aufgearbeitet wird.
- 10 2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei dem Schichtverdampfer um eine Vorrichtung handelt, die keine bewegten Teile aufweist.
- 15 3. Verfahren nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei dem Schichtverdampfer um einen Fallfilmverdampfer handelt.
- 20 4. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, dass dem Schichtverdampfer eine Destillationskolonne nachgeschaltet ist.
- 25 5. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, dass die Suspension in zwei oder mehreren hintereinandergeschalteten Schichtverdampfern, die auf verschiedenen Druckstufen arbeiten, aufgearbeitet wird.
- 30 6. Verfahren nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, dass der erste Schichtverdampfer bei einem Druck von 0,5 bar bis 25 bar arbeitet und der zweite Schichtverdampfer einen Druck aufweist, der 0,01 bar bis 1 bar geringer ist, als der Druck des ersten Schichtverdampfers.
- 35 7. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, dass in der Suspension das Carbamylchlorid in einer Menge von 0,01 bis 35 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht des herzustellenden Isocyanats, vorliegt.
- 40 8. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, dass die Suspension als zusätzliche feste Bestandteile Aminhydrochloride und Harnstoffe enthält.

45

Fig.

12 JC06 Rec'd PCT/PTO 24 MAR 2005

We claim:-

- 5 1. A process for the preparation of isocyanates by reacting primary amines with phosgene in a reactor, wherein the reaction discharge is present in the form of a suspension which contains the isocyanate to be prepared, as a liquid, and carbamyl chlorides as a solid, and the suspension is worked up in a film evaporator.
- 10 2. A process as claimed in claim 1, wherein the film evaporator is an apparatus which has no moving parts.
- 15 3. A process as claimed in claim 1 or 2, wherein the film evaporator is a falling-film evaporator.
- 20 4. A process as claimed in any of claims 1 to 3, wherein a distillation column is connected downstream of the film evaporator.
- 25 5. A process as claimed in any of claims 1 to 4, wherein the suspension is worked up in two or more film evaporators which are arranged in series and operate at different pressure levels.
- 30 6. A process as claimed in claim 5, wherein the first film evaporator operates at from 0.5 to 25 bar and the second film evaporator has a pressure which is from 0.01 to 1 bar lower than the pressure of the first film evaporator.
- 35 7. A process as claimed in any of claims 1 to 6, wherein the carbamyl chloride is present in the suspension in an amount of from 0.01 to 35% by weight, based on the weight of the isocyanate to be prepared.
- 40 8. A process as claimed in any of claims 1 to 7, wherein the suspension contains amine hydrochlorides and ureas as additional solid components.
- 45 9. A production plant for the production of isocyanates by reacting primary amines with phosgene, comprising a reactor in which the reaction of primary amines with phosgene takes place and

Fig.

13

at least one film evaporator to which the reaction discharge of the reactor, which is present in the form of a suspension which contains the isocyanate to be prepared, as a liquid, and carbamyl chlorides as a solid, is fed.

5

10. The use of film evaporators for working up reaction discharges from phosgenation reactors, the reaction discharges being present in the form of a suspension which contains the isocyanate to be prepared, as a liquid, and carbamyl chlorides as a solid.

10

15

20

25

30

35

40

45